

## Bibliographic Fields

## Document Identity

(19)【発行国】

日本国特許庁(JP)

(12)【公報種別】

公開特許公報(A)

(11)【公開番号】

特開2003-105299(P2003-105299  
A)

(43)【公開日】

平成15年4月9日(2003. 4. 9)

## Public Availability

(43)【公開日】

平成15年4月9日(2003. 4. 9)

## Technical

(54)【発明の名称】

熱伝導性感圧接着剤、熱伝導性感圧接着シート及びその積層体

(51)【国際特許分類第7版】

C09J133/08

7/00

11/04

11/06

【FI】

C09J133/08

7/00

11/04

11/06

【請求項の数】

7

【出願形態】

OL

【全頁数】

8

(19) [Publication Office]

Japan Patent Office (JP)

(12) [Kind of Document]

Unexamined Patent Publication (A)

(11) [Publication Number of Unexamined Application]

Japan Unexamined Patent Publication 2003- 105299 (P2003-105299A)

(43) [Publication Date of Unexamined Application]

Heisei 15\*April 9\* (2003.4.9)

(43) [Publication Date of Unexamined Application]

Heisei 15\*April 9\* (2003.4.9)

(54) [Title of Invention]

**THERMAL CONDUCTIVITY PRESSURE-SENSITIVE  
ADHESIVE , THERMAL CONDUCTIVITY  
PRESSURE-SENSITIVE ADHESION SHEET AND ITS  
LAMINATE**

(51) [International Patent Classification, 7th Edition]

C09J133/08

7/00

11/04

11/06

【FI】

C09J133/08

7/00

11/04

11/06

【Number of Claims】

7

【Form of Application】

OL

【Number of Pages in Document】

8

**JP2003105299A**

**2003-4-9**

**【テーマコード(参考)】**

4J0044J040

**【F ターム(参考)】**

4J004 AA02 AA04 AA06 AA07 AA10 AA12  
AA17 AA18 AB01 BA02 DB02 GA01 4J040  
BA202 DA132 DB022 DF041 DN032 EB052  
GA05 GA08 GA13 GA22 HA136 HA206  
HA296 HA326 HB12 HB25 HB29 HB31 HB34  
JA09 JB09 KA03 KA26 KA42 KA43 LA01  
LA08

**Filing**

**【審査請求】**

未請求

**(21)【出願番号】**

特願2001-302346(P2001-302346)

**(22)【出願日】**

平成13年9月28日(2001. 9. 28)

**Parties**

**Applicants**

**(71)【出願人】**

**【識別番号】**

000002174

**【氏名又は名称】**

積水化学工業株式会社

**【住所又は居所】**

大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号

**Inventors**

**(72)【発明者】**

**【氏名】**

戸川 勝也

**【住所又は居所】**

京都市南区上鳥羽上調子町2-2 積水化学工業株式会社内

**(72)【発明者】**

**【氏名】**

東 賢一

**【住所又は居所】**

**[Theme Code (For Reference)]**

4J0044J040

**[F Term (For Reference)]**

4J004 AA02 AA04 AA06 AA07 AA10 AA12 AA17 AA18  
AB01 BA02 DB02 GA01 4J040 BA202 DA132 DB022 DF  
041 DN032 EB052 GA05 GA08 GA13 GA22 HA136 HA206  
HA296 HA326 HB12 HB25 HB29 HB31 HB34 JA09 JB09  
kA 03 kA 26 kA 42 kA 43 LA01 LA08

**[Request for Examination]**

Unrequested

**(21) [Application Number]**

Japan Patent Application 2001- 302346 (P2001- 302346)

**(22) [Application Date]**

Heisei 13\*September 28\* (2001.9.28)

**(71) [Applicant]**

**[Identification Number]**

000002174

**[Name]**

SEKISUI CHEMICAL CO. LTD. (DB 69-053-6024)

**[Address]**

Osaka Prefecture Osaka City Kita-ku Nishi Tenma 2-4-4

**(72) [Inventor]**

**[Name]**

Togawa Katsuya

**[Address]**

Kyoto City Minami-ku Kamitoba Kamichoshi-machi 2- 2  
Sekisui Chemical Co. Ltd. (DB 69-053-6024) \*

**(72) [Inventor]**

**[Name]**

\* Kenichi

**[Address]**

京都市南区上鳥羽上調子町2-2 積水化学工業株式会社内

(72)【発明者】

【氏名】

俵頭 俊司

【住所又は居所】

京都市南区上鳥羽上調子町2-2 積水化学工業株式会社内

## Abstract

(57)【要約】

【課題】

熱伝導性能に優れ、さらに柔軟で形状追従性及び良好な接着性を有する熱伝導性感圧接着剤、熱伝導性感圧接着シート及びそれを用いた積層体を提供する。

【解決手段】

(a)炭素数が 2~18 のアルキル基を有するアクリル酸アルキルエステルを含有する共重合体 50~97 重量部、(b)前記共重合体(a)と非相溶かつ融点が 40~80 deg C である化合物 3~50 重量部、及び(c)熱伝導性微粒子 10~500 重量部からなる熱伝導性感圧接着剤。

## Claims

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

(a)炭素数が 2~18 のアルキル基を有するアクリル酸アルキルエステルを含有する共重合体 50~97 重量部、(b)前記共重合体(a)と非相溶かつ融点が 40~80 deg C である化合物 3~50 重量部、及び(c)熱伝導性微粒子 10~500 重量部からなることを特徴とする熱伝導性感圧接着剤。

【請求項 2】

(a)炭素数が 2~18 のアルキル基を有するアクリル酸アルキルエステルを含有する共重合体の重量平均分子量が、3 万~30 万であることを特徴とする請求項 1 記載の熱伝導性感圧接着剤。

【請求項 3】

(b)前記共重合体(a)と非相溶かつ融点が 40~80

Kyoto City Minami-ku Kamitoba Kamichoshi-machi 2- 2  
Sekisui Chemical Co. Ltd. (DB 69-053-6024) \*

(72) [Inventor]

[Name]

sack \* Shunji

[Address]

Kyoto City Minami-ku Kamitoba Kamichoshi-machi 2- 2  
Sekisui Chemical Co. Ltd. (DB 69-053-6024) \*

(57) [Abstract ]

[Problems to be Solved by the Invention ]

It is superior in thermal conductivity , furthermore it offers thermal conductivity pressure-sensitive adhesive , thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet which possesses shape conforming behavior and satisfactory adhesiveness with flexible and the laminate which uses that.

[Means to Solve the Problems ]

copolymer 50~97parts by weight , (b ) aforementioned copolymer which contains alkyl acrylate ester where the(a ) carbon number has alkyl group of 2 - 18 (a ) with thermal conductivity pressure-sensitive adhesive . which consists of compound 3~50parts by weight , and (c ) thermal conductivity fine particle 10~500parts by weight where immiscible and melting point are 40 - 80 deg C

[Claim (s )]

[Claim 1 ]

copolymer 50~97parts by weight , (b ) aforementioned copolymer which contains alkyl acrylate ester where the(a ) carbon number has alkyl group of 2 - 18 (a ) with thermal conductivity pressure-sensitive adhesive . which designates that it consists of compound 3~50parts by weight , and (c ) thermal conductivity fine particle 10~500parts by weight where immiscible and the melting point are 40 - 80 deg C as feature

[Claim 2 ]

weight average molecular weight of copolymer which contains alkyl acrylate ester where (a ) carbon number has alkyl group of 2 - 18, 30,000 - 300,000 thermal conductivity pressure-sensitive adhesive . which is stated in the Claim 1 which designates that is as feature

[Claim 3 ]

(b ) aforementioned copolymer (a ) with compound where

deg C である化合物が、高級脂肪族系アルコール、高級脂肪酸、フタル酸、及びこれらのエステルからなる群より選ばれた少なくとも一つであることを特徴とする請求項 1 又は 2 記載の熱伝導性感圧接着剤。

#### 【請求項 4】

さらに(d)粘着付与樹脂 3~50 重量部を含有することを特徴とする請求項 1~3 いずれか一項に記載の熱伝導性感圧接着剤。

#### 【請求項 5】

40 deg C と 80 deg C における貯蔵弾性率の比 (40 deg C 貯蔵弾性率/80 deg C 貯蔵弾性率)が 100 以上であることを特徴とする請求項 1~4 いずれか一項に記載の熱伝導性感圧接着剤。

#### 【請求項 6】

請求項 1~5 いずれか一項に記載の熱伝導性感圧接着剤からなり、厚みが 10~200  $\mu$ m であることを特徴とする熱伝導性感圧接着シート。

#### 【請求項 7】

請求項 6 記載の熱伝導性感圧接着シートの両側に、2 枚の剥離力の異なる離型処理されたフィルムが積層されてなることを特徴とする熱伝導性感圧接着シート積層体。

### Specification

#### 【発明の詳細な説明】

【0001】

#### 【発明の属する技術分野】

本発明は、優れた熱伝導効率(熱抵抗)及び柔軟で形状追従性を有する熱伝導性感圧接着剤、及び熱伝導性感圧接着シートさらにそれを用いた積層体に関する。

【0039】

#### (実施例 2)

##### 実施例 1

得られた分子量 15 万の共重合体溶液を固相分換算で 90 重量部に対し、1-ヘキサデカノール(和光純薬社製;融点 51 deg C)10 重量部、窒化

immiscible and the melting point are 40 - 80 deg C, from group which consists of high grade aliphatic type alcohol, higher aliphatic acid, phthalic acid, and these ester thermal conductivity pressure-sensitive adhesive, which is stated in Claim 1 or 2 which designates that it is at least one which is chosen as feature

#### [Claim 4]

Furthermore thermal conductivity pressure-sensitive adhesive, which is stated in Claim 1 ~3any Claim which designates that (d) adhesion-providing resin 3~50parts by weight is contained as feature

#### [Claim 5]

thermal conductivity pressure-sensitive adhesive, which is stated in Claim 1 ~4any Claim which designates that 40 deg C and ratio (40 deg Celastic storage modulus /80 deg Celastic storage modulus) of elastic storage modulus in 80 deg C are 100 or more as feature

#### [Claim 6]

It consists of thermal conductivity pressure-sensitive adhesive which is stated in Claim 1 ~5any Claim, thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet, which designates that thickness is 10 - 200;  $\mu$ m as feature

#### [Claim 7]

In both sides of thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet which is stated in Claim 6, different release treated of 2 peeling force film which is done being laminated, thermal conductivity pressure-sensitive adhesion laminate sheet, which designates that it becomes as feature

#### [Description of the Invention]

【0001】

#### [Technological Field of Invention]

this invention heat conduction efficiency which is superior (thermorestivity) and thermal conductivity pressure-sensitive adhesive, and thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet which possess shape conforming behavior with flexible furthermore regards laminate which uses that.

【0039】

#### (Working Example 2)

##### Working Example 1

So copolymer solution of molecular weight 150,000 which is acquired 1-hexadecanol (Wako Pure Chemical Industries Ltd. (DB 69-059-8875) supplied; melting point 51 deg C) 10

ホウ素(商品名「グレード HGP」、電気化学工業社製;鱗片形状、粒子径  $5\mu\text{m}$ 、純度 99%、)100重量部を均一になるまで混合し、熱伝導性感圧接着剤溶液を得た。

以下、実施例 1 と同様にして熱伝導性感圧接着シートを得た。

【0041】

(実施例 4)

実施例 3

で得られた分子量 27 万の共重合体溶液を固形分換算で 60 重量部に対し、パルミチン酸(和光純薬社製;融点 61 deg C)40 重量部、窒化ホウ素(商品名「グレード HGP」、電気化学工業社製;鱗片形状、粒子径  $5\mu\text{m}$ 、純度 99%、)500 重量部を均一になるまで混合し、熱伝導性感圧接着剤溶液を得た。

以下、実施例 1 と同様にして熱伝導性感圧接着シートを得た。

【0042】

(実施例 5)

実施例 1

で得られた分子量 15 万の共重合体溶液を固形分換算で 90 重量部に対し、ジシクロヘキシルフタレート(和光純薬社製;)10 重量部、窒化アルミニウム(商品名「グレード F」、トクヤマ社製;粒子径  $0.6\mu\text{m}$ 、純度 99.0%、)100 重量部を均一になるまで混合し、熱伝導性感圧接着剤溶液を得た。

以下、実施例 1 と同様にして熱伝導性感圧接着シートを得た。

【0043】

(実施例 6)

実施例 1

で得られた分子量 15 万の共重合体溶液を固形分換算で 80 重量部に対し、1-ヘキサデカノール(和光純薬社製)20 重量部、窒化アルミニウム(商品名「グレード F」、トクヤマ社製;粒子径  $0.6$

parts by weight, boron nitride (tradename "grade HGP", Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha (DB 69-056-8985) supplied ;flake condition, particle diameter  $5\mu\text{m}$ , purity 99%, )100 parts by weight until it becomes uniform, were mixed with solid fraction conversion vis-a-vis 90 parts by weight, thermal conductivity pressure-sensitive adhesive solution was acquired.

thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet was acquired below, to similar to Working Example 1.

【0041】

(Working Example 4)

Working Example 3

So copolymer solution of molecular weight 270,000 which is acquired palmitic acid (Wako Pure Chemical Industries Ltd. (DB 69-059-8875) supplied ;melting point 61 deg C) 40 parts by weight, boron nitride (tradename "grade HGP", Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha (DB 69-056-8985) supplied ;flake condition, particle diameter  $5\mu\text{m}$ , purity 99%, )500 parts by weight until it becomes uniform, were mixed with solid fraction conversion vis-a-vis 60 parts by weight, thermal conductivity pressure-sensitive adhesive solution was acquired.

thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet was acquired below, to similar to Working Example 1.

【0042】

(Working Example 5)

Working Example 1

So copolymer solution of molecular weight 150,000 which is acquired dicyclohexyl phthalate (Wako Pure Chemical Industries Ltd. (DB 69-059-8875) supplied ; ) 10 parts by weight, aluminum nitride (tradename "grade F", Tokuyama Corporation (DB 69-057-1716) supplied ;particle diameter  $0.6\mu\text{m}$ , purity 99.0%, )100 parts by weight until it becomes uniform, were mixed with solid fraction conversion vis-a-vis 90 parts by weight, thermal conductivity pressure-sensitive adhesive solution was acquired.

thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet was acquired below, to similar to Working Example 1.

【0043】

(Working Example 6)

Working Example 1

So copolymer solution of molecular weight 150,000 which is acquired rosin ester (tradename "super ester A-75"; Arakawa Chemical Industries Ltd. (DB 69-057-3977) supplied ) 5 parts by weight until it becomes uniform, were mixed with

$\mu\text{m}$ 、純度 99.0%、)100 重量部、及び粘着性付与樹脂としてロジンエステル(商品名「スーパーエステル A-75」;荒川化学社製)5 重量部を均一になるまで混合し、熱伝導性感圧接着剤溶液を得た。

以下、実施例 1 と同様にして熱伝導性感圧接着シートを得た。

【0044】

(実施例 7)

実施例 3

で得られた分子量 27 万の共重合体溶液を固相分換算で 70 重量部に対し、1-ヘキサデカノール(和光純薬社製)30 重量部、窒化アルミニウム(商品名「グレード F」、トクヤマ社製;粒子径 0.6  $\mu\text{m}$ 、純度 99.0%、)100 重量部、及び粘着性付与樹脂としてロジンエステル(商品名「スーパーエステル A-75」;荒川化学社製)40 重量部を均一になるまで混合し、熱伝導性感圧接着剤溶液を得た。

以下、実施例 1 と同様にして熱伝導性感圧接着シートを得た。

【0045】

(比較例 1)

実施例 1

で得られた分子量 15 万の共重合体溶液を固相分換算で 90 重量部に対し、トリデシルアルコール(和光純薬社製)10 重量部、窒化ホウ素(商品名「グレード HGP」、電気化学工業社製;鱗片形状、粒子径 5  $\mu\text{m}$ 、純度 99%、)30 重量部を均一になるまで混合し、熱伝導性感圧接着剤溶液を得た。

以下、実施例 1 と同様にして熱伝導性感圧接着シートを得た。

【0046】

(比較例 2)

実施例 1

solid fraction conversion vis-a-vis 80 parts by weight, 1-hexadecanol (Wako Pure Chemical Industries Ltd. (DB 69-059-8875) supplied) 20 parts by weight, aluminum nitride (tradename "grade F", Tokuyama Corporation (DB 69-057-1716) supplied; particle diameter 0.6;  $\mu\text{m}$ , purity 99.0%,) as 100 parts by weight, and tackiness-providing resin, thermal conductivity pressure-sensitive adhesive solution was acquired.

thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet was acquired below, to similar to Working Example 1.

【0044】

(Working Example 7)

Working Example 3

So copolymer solution of molecular weight 270,000 which is acquired rosin ester (tradename "super ester A-75"; Arakawa Chemical Industries Ltd. (DB 69-057-3977) supplied) 40 parts by weight until it becomes uniform, were mixed with solid fraction conversion vis-a-vis 70 parts by weight, 1-hexadecanol (Wako Pure Chemical Industries Ltd. (DB 69-059-8875) supplied) 30 parts by weight, aluminum nitride (tradename "grade F", Tokuyama Corporation (DB 69-057-1716) supplied; particle diameter 0.6;  $\mu\text{m}$ , purity 99.0%,) as 100 parts by weight, and tackiness-providing resin, thermal conductivity pressure-sensitive adhesive solution was acquired.

thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet was acquired below, to similar to Working Example 1.

【0045】

(Comparative Example 1)

Working Example 1

So copolymer solution of molecular weight 150,000 which is acquired tridecyl alcohol (Wako Pure Chemical Industries Ltd. (DB 69-059-8875) supplied) 10 parts by weight, boron nitride (tradename "grade HGP", Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha (DB 69-056-8985) supplied; flake condition, particle diameter 5;  $\mu\text{m}$ , purity 99%,) 30 parts by weight until it becomes uniform, were mixed with solid fraction conversion vis-a-vis 90 parts by weight, thermal conductivity pressure-sensitive adhesive solution was acquired.

thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet was acquired below, to similar to Working Example 1.

【0046】

(Comparative Example 2)

Working Example 1

で得られた分子量 15 万の共重合体溶液を固形分換算で 90 重量部に対し、ステアリン酸アミド(和光純薬社製)10 重量部、窒化ホウ素(商品名「グレード HGP」、電気化学工業社製;鱗片形状、粒子径 5  $\mu$  m、純度 99%、)10 重量部を均一になるまで混合し、熱伝導性感圧接着剤溶液を得た。

以下、実施例 1 と同様にして熱伝導性感圧接着シートを得た。

【0047】

(比較例 3)

実施例 3

で得られた分子量 27 万の共重合体溶液を固形分換算で 40 重量部に対し、1-ヘキサデカノール(和光純薬社製)60 重量部、窒化ホウ素(商品名「グレード HGP」、電気化学工業社製;鱗片形状、粒子径 5  $\mu$  m、純度 99%、)30 重量部を均一になるまで混合し、熱伝導性感圧接着剤溶液を得た。

以下、実施例 1 と同様にして熱伝導性感圧接着シートを得た。

【0048】

(比較例 4)

実施例 1

で得られた分子量 15 万の共重合体溶液を固形分換算で 99 重量部に対し、1-ヘキサデカノール(和光純薬社製)1 重量部、窒化ホウ素(商品名「グレード HGP」、電気化学工業社製;鱗片形状、粒子径 5  $\mu$  m、純度 99%、)30 重量部を均一になるまで混合し、熱伝導性感圧接着剤溶液を得た。

以下、実施例 1 と同様にして熱伝導性感圧接着シートを得た。

【0049】

各実施例及び比較例で得られた熱伝導性感圧接着剤及び熱伝導性感圧接着シートについて、以下の評価を行った。

So copolymer solution of molecular weight 150,000 which is acquired stearamide (Wako Pure Chemical Industries Ltd. (DB 69-059-8875 ) supplied ) 10 parts by weight , boron nitride (tradename "grade HGP " , Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha (DB 69-056-8985 ) supplied ;flake condition, particle diameter 5;mu m , purity 99% , )10 parts by weight until it becomes uniform , were mixed with solid fraction conversion vis-a-vis 90 parts by weight , thermal conductivity pressure-sensitive adhesive solution was acquired.

thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet was acquired below, to similar to Working Example 1.

【0047】

(Comparative Example 3 )

Working Example 3

So copolymer solution of molecular weight 270,000 which is acquired 1 -hexadecanol (Wako Pure Chemical Industries Ltd. (DB 69-059-8875 ) supplied ) 60 parts by weight , boron nitride (tradename "grade HGP " , Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha (DB 69-056-8985 ) supplied ;flake condition, particle diameter 5;mu m , purity 99% , ) 30 parts by weight until it becomes uniform , were mixed with solid fraction conversion vis-a-vis 40 parts by weight , thermal conductivity pressure-sensitive adhesive solution was acquired.

thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet was acquired below, to similar to Working Example 1.

【0048】

(Comparative Example 4 )

Working Example 1

So copolymer solution of molecular weight 150,000 which is acquired 1 -hexadecanol (Wako Pure Chemical Industries Ltd. (DB 69-059-8875 ) supplied ) 1 part by weight , boron nitride (tradename "grade HGP " , Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha (DB 69-056-8985 ) supplied ;flake condition, particle diameter 5;mu m , purity 99% , ) 30 parts by weight until it becomes uniform , were mixed with solid fraction conversion vis-a-vis 99 parts by weight , thermal conductivity pressure-sensitive adhesive solution was acquired.

thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet was acquired below, to similar to Working Example 1.

【0049】

evaluation below was done concerning thermal conductivity pressure-sensitive adhesive and thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet which are acquired with <evaluation method > each Working Example and

## 1)熱抵抗評価

得られた熱伝導性感圧接着シートの熱伝導性を評価するために、前記シートの熱抵抗値を、図 1 に示す測定 1 装置により測定した。

この測定は、アルミニウム製の冷却器 1 の上に、熱伝導性感圧接着シート 2 を積層し、更にその上に熱源となる IC3(韓国製:7805 UC8847、電力量 3.5W)を積層した。

この状態で、ボルト 4 により、締め付けトルク 1N・m で締め付け、IC に電源を入れて 5 分後の T1 部分と T2 部分との温度を測定した。

なお、冷却器 1 は、内部に恒温水槽 5 から 23 deg C の水を循環供給されるようになっている。

下記式(1)を用いて熱抵抗を算出した。

熱抵抗 ( deg C/W ) = (T1-T2) / (IC への供給電力量) \* (1)

## 2)接着力評価(90 度引き剥がし法)

JIS Z 0237 に準拠して試験を行った。

2.0 × 30 × 100 のアルミ製試験板に実施例及び比較例で得られた熱伝導性接着シートを貼付し、2000g のローラで圧着した後、反対面の離型処理されたポリエチレンテレフタレートフィルムを剥離した。

さらにその上にコロナ処理されたポリエチレンテレフタレートフィルムを貼付し、剥離試験用のつかみ部とした。

以後 JIS Z 0237 90 度引き剥がし法に準拠して試験を行った。

## 3)アルミ板への貼付性評価

上記の粘着力試験と同様のアルミ板を用いて実施例及び比較例で得られた熱伝導性接着シート貼付し、手で軽く押さえつけて貼付し、反対側の離型フィルムを剥がした。

評価基準は、以下 2 段階で評価した。

○(良好):アルミ板に対してきわめて容易に貼付できた。

## Comparative Example .

## 1) thermoresistivity evaluation

In order evaluation to do thermal conductivity of thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet which it acquires, was measured due to measurement 1 device which shows thermoresistivity value of aforesaid sheet, in Figure 1 .

this measurement, on aluminum cooler 1, laminated thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet 2, furthermore laminated IC 3 (Republic of Korea make: 7805 UC8847, amount of electric power 3.5W ) which becomes heat source on that.

With this state, it tightened with tightening torque 1N\*m with bolt 4, inserted power supply in IC and measured temperature of T1 portion and T2 portions of 5 min later.

Furthermore, cooler 1 in interior is designed in such a way that the water of constant temperature water tank 5 to 23 deg C circulating supply it is done.

thermoresistivity was calculated making use of below-mentioned Formula (1).

thermoresistivity ( deg C/W ) = (T1- T2 ) / (amount of supplied electricity to IC ) \* (1)

## 2) adhesion strength evaluation (90 -degree peel method )

Conforming to JIS Z 0237, it tested.

2.0 It stuck thermal conductivity adhesive sheet which in aluminum test plate of X 30X 100 is acquired with Working Example and Comparative Example, pressure bonding after doing, release treated of opposite surface the polyethylene terephthalate film which is done it peeled off with roller of 2000 g.

Furthermore it stuck polyethylene terephthalate film which corona treatment is done on that, made grip for peel test .

Conforming to from now on JIS Z 0237 90-degree peel method, it tested.

## 3) tackiness evaluation to aluminum sheet

thermal conductivity adhesive sheet which is acquired with Working Example and Comparative Example making use of aluminum sheet which is similar to above-mentioned tackiness test it stuck, held down lightly stuck by hand and, peeled release film of opposing side .

Below evaluation it did evaluation standard, with 2 -stage .

Quite it could stick easily vis-a-vis 0 (Satisfactory):aluminum sheet .



×(不良):アルミ板に接着しない、もしくは離形紙を剥離するときに浮きが生じる、または凝集破壊した。

#### 4)貯蔵弾性率比の評価

得られた熱伝導性感圧接着シートを積層し、約0.8mmの厚みの評価用シートを作製し、40 deg C及び80 deg Cにおける貯蔵弾性率を、動的粘弾性測定装置(レオメトリックス社製、RDA-2、周波数0.1Hz)で測定し、下記式(2)を用いて、貯蔵弾性率比を算出した。

貯蔵弾性率比=(40 deg Cにおける貯蔵弾性率)/(80 deg Cにおける貯蔵弾性率)・・・(2)

尚、比較例1は、評価用シートが軟化しすぎて、離型紙から剥がれず、凝集破壊したため熱抵抗評価、粘着力評価ができなかった。

また、比較例3は、接着シートに粘着性、凝集力がなく貼付できなかったため測定できなかった。

【0050】

【表1】

	化合物(b) の融点(℃)	熱抵抗 (℃/W)	粘着力 (N/25mm)	アルミ板へ の貼付性	(a)40℃貯蔵弾 性率 (Pa)	(b)80℃貯蔵弾 性率 (Pa)	(a)40℃貯蔵弾性率 /(b)80℃貯蔵弾性率
実施例1	45	0.20	8.18	○	$1.6 \times 10^3$	$1.5 \times 10^1$	110
実施例2	51	0.17	7.06	○	$2.8 \times 10^4$	$4.5 \times 10^1$	620
実施例3	54	0.15	6.13	○	$4.3 \times 10^5$	$3.2 \times 10^2$	1300
実施例4	61	0.15	4.26	○	$5.8 \times 10^6$	$4.3 \times 10^4$	130
実施例5	61	0.16	7.35	○	$3.6 \times 10^3$	$2.4 \times 10^1$	150
実施例6	51	0.16	7.20	○	$6.7 \times 10^5$	$4.2 \times 10^2$	1600
実施例7	51	0.14	7.35	○	$5.8 \times 10^5$	$7.2 \times 10^3$	810
比較例1	25℃以下	—	—	×	$1.0 \times 10^2$	$1.4 \times 10^1$	7.1
比較例2	105	0.31	7.69	○	$7.3 \times 10^3$	$4.4 \times 10^2$	17
比較例3	51	—	1.08	×	$6.2 \times 10^4$	$1.0 \times 10^1$	6200
比較例4	51	0.31	—	○	$4.9 \times 10^3$	$5.5 \times 10^1$	89

【0002】

#### 【従来の技術】

従来より、電気・電子部品等の発熱体と放熱体との間に介在させ、電気・電子部品から発生する熱を放散させる目的で、熱伝導性感圧接着剤を用いた接着シート(以下、熱伝導性感圧接着シートという)が使用されている。

gluing it does not do in X (deficiency):aluminum sheet, or when peeling off, floating causes release paper, or cohesive failure it did.

#### 4) evaluation of elastic storage modulus ratio

thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet which it acquires was laminated, evaluation sheet of thickness of approximately 0.8 mm was produced, 40 deg C and elastic storage modulus in 80 deg C, were measured with dynamic viscoelasticity measuring apparatus (Rheometrics supplied, RDA-2, frequency 0.1 Hz), elastic storage modulus ratio was calculated making use of below-mentioned Formula (2).

elastic storage modulus ratio = (elastic storage modulus in 40 deg C) / (elastic storage modulus in 80 deg C) \* \* (2)

Furthermore evaluation sheet softening too much, it did not exfoliate the Comparative Example 1, from release paper, because cohesive failure it does, thermoresistivity evaluation, tackiness evaluation it was not possible.

In addition, Comparative Example 3, was not a tackiness, cohesive force in adhesive sheet and because it cannot stick, could not measure.

【0050】

【Table 1】

【0002】

#### 【Prior Art】

From until recently, lying between between electrical & electronic parts or other heating element and heat sink, with objective which radiates heat which occurs from electrical & electronic parts, adhesive sheet (Below, thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet you call)

シートという)が使用されている。

しかしながら、電気・電子部品に限らず、前記接着シートが使用される発熱体と放熱体との表面は平滑でないことが多く、この場合、発熱体や放熱体と熱伝導性感圧接着シートとの間の接触面積が減少するので、発熱体から放熱体への熱伝導効率が増少、すなわち熱抵抗が増加し、本来の放熱効果が発揮できないことがあった。

このような熱抵抗は、発熱体と放熱体との間の熱移動特性の測定により得られ、熱抵抗が小さいほど、発熱体から放熱体への熱移動に優れ、高い放熱効果が得られるのである。

そのため上記接着シートは、発熱体及び放熱体の表面に接着シートが密着し接触面積を大きくすることによって放熱効果を上げることが可能となる。

このため、熱伝導性感圧接着シートには、柔軟性や形状追従性が必要とされていた。

#### 【0003】

従来、このような柔軟性を備えた熱伝導性感圧接着シートとして、炭化珪素、窒化珪素、窒化アルミニウム等の熱伝導性微粒子をシリコーンゴムやシリコンオイル等の樹脂材料に充填した熱伝導性樹脂組成物(例えば、特開平 9-302231 号公報)や、アクリル系重合体に熱伝導性微粒子をランダムに分散させた熱伝導性感圧接着シート(例えば、特開平 6-88061 号公報)が知られている。

#### 【0004】

しかしながら、このような熱伝導性微粒子を樹脂に充填する場合、高い熱伝導性を得るために微粒子の充填量を高くすると、樹脂が急激に固くなり、柔軟性が維持できないという問題があった。

また、発熱体と放熱体との密着性を向上させるために、融点を有するワックスのような樹脂に熱伝導微粒子を添加したものが開示されている(米国特許 5950066 号、米国特許 6197859 号)。

which uses thermal conductivity pressure-sensitive adhesive is used.

But, surface of heating element and heat sink where aforementioned adhesive sheet is used not just electrical & electronic parts, there to be many times when it is not a smooth, in case of this, because contact area between heating element and heat sink and thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet decreases, heat conduction efficiency to heat sink decreases from heating element, namely thermoresistivity increases, There was a thing which cannot show original heat discharge effect.

When thermoresistivity a this way is acquired by measurement of heat transport characteristic between heating element and heat sink, thermoresistivity is small, from heating element it is superior in heat transfer to heat sink, high heat discharge effect is acquired.

Because of that adhesive sheet sticks above-mentioned adhesive sheet, to the surface of heating element and heat sink and it becomes possible to increase heat discharge effect by fact that contact area is enlarged.

Because of this, softening and shape conforming behavior were needed in the thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet.

#### 【0003】

Until recently, thermal conductivity resin composition which is filled in silicone rubber and silicon oil or other resin material (for example Japan Unexamined Patent Publication Hei 9-302231 disclosure) and, thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet (for example Japan Unexamined Patent Publication Hei 6-88061 disclosure) which disperses thermal conductivity fine particle to random in the acrylic polymer has been known silicon carbide, silicon nitride, aluminum nitride or other thermal conductivity fine particle as thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet which has softening a this way.

#### 【0004】

But, thermal conductivity fine particle a this way when it is filled in resin, when the filled amount of fine particle is made high in order to obtain high thermal conductivity, the resin becomes suddenly hard, there was a problem that cannot be maintained softening.

In addition, in order to improve, those which add heat conduction fine particle to the resin like wax which possesses melting point have been disclosed the adhesion of heating element and heat sink, (U.S. Patent 5950066 number and U.S. Patent 6197859 number).

これらは、発熱体の熱によって溶融し、放熱体との密着性を向上して高い放熱効果を得るものである。

しかしながら、これらは、オレフィン系のワックスを大量に添加しているために、接着力が極めて低く、放熱体に対する貼付性が極めて悪いいため、場合によっては貼付した際に気泡が入り、熱抵抗に悪影響を及ぼすことがある。

また、接着性を向上するために、これらにアクリル粘着剤等を積層すると、粘着性は向上するものの熱伝導性能が大幅に悪化する。

このため、優れた熱抵抗と接着性とを両立する熱伝導性感圧接着シートが求められていた。

#### 【0005】

##### 【発明が解決しようとする課題】

本発明は、上記現状に鑑み、熱伝導性能に優れ、さらに柔軟で形状追随性を有し、良好な接着性を有する熱伝導性感圧接着剤、熱伝導性感圧接着シート及びそれを用いた積層体を提供することを目的とする。

#### 【0006】

##### 【課題を解決するための手段】

上記目的を達成するために、請求項 1 記載の本発明は、(a)炭素数が 2~18 のアルキル基を有するアクリル酸アルキルエステルを含有する共重合体 50~97 重量部、(b)前記共重合体(a)と非相溶かつ融点が 40~80 deg C である化合物 3~50 重量部、及び(c)熱伝導性微粒子 10~500 重量部からなる熱伝導性感圧接着剤を提供する。

また、請求項 2 記載の本発明は、(a)炭素数が 2~18 のアルキル基を有するアクリル酸アルキルエステルを含有する共重合体の重量平均分子量が、3 万~30 万である請求項 1 記載の熱伝導性感圧接着剤を提供する。

また、請求項 3 記載の本発明は、(b)前記共重合体(a)と非相溶かつ融点が 40~80 deg C である化合物が、高級脂肪族系アルコール、高級脂肪酸、フタル酸、及びこれらのエステルからなる群より選ばれた少なくとも一つである請求項 1 又は 2 記載の熱伝導性感圧接着剤を提供する。

It is something which obtains heat discharge effect where it melts these, at heat of heating element, adhesion of heat sink improves and is high.

But, as for these, because wax of olefin is added to the large scale, adhesion strength quite is low, because tackiness for heat sink quite is bad, when depending, there are times when gas bubble enters into the occasion where it sticks, causes adverse effect to thermoresistivity.

In addition, when adhesiveness in order to improve, acrylic adhesive etc is laminated in these, as for tackiness thermal conductivity of those which improved deteriorates greatly.

Because of this, both achievements is done thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet which was sought the thermoresistivity and adhesiveness which are superior.

#### 【0005】

##### [Problems to be Solved by the Invention]

You consider this invention, to above-mentioned present state, are superior in thermal conductivity, furthermore possess shape conforming behavior with flexible, you designate that thermal conductivity pressure-sensitive adhesive, thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet which possesses satisfactory adhesiveness and laminate which uses that are offered as objective.

#### 【0006】

##### [Means to Solve the Problems]

In order to achieving above-mentioned objective, this invention which is stated in Claim 1 copolymer 50~97 parts by weight, (b) aforementioned copolymer which contains alkyl acrylate ester where (a) carbon number has alkyl group of 2 - 18 (a) with offers thermal conductivity pressure-sensitive adhesive which consists of compound 3~50 parts by weight, and (c) thermal conductivity fine particle 10~500 parts by weight where immiscible and melting point are 40 - 80 deg C.

In addition, as for this invention which is stated in Claim 2, weight average molecular weight of copolymer which contains alkyl acrylate ester where (a) carbon number has alkyl group of 2 - 18, 30,000 - 300,000 offers thermal conductivity pressure-sensitive adhesive which is stated in the Claim 1 which is.

In addition, as for this invention which is stated in Claim 3, (b) aforementioned copolymer (a) with compound where immiscible and melting point are 40 - 80 deg C, offers thermal conductivity pressure-sensitive adhesive which is stated in Claim 1 or 2 which is a at least one which is chosen from group which consists of high grade aliphatic type alcohol, higher aliphatic acid, phthalic acid, and these ester.

また、請求項 4 記載の本発明は、さらに(d)粘着付与樹脂 3~50 重量部を含有する請求項 1~3 いずれか一項に記載の熱伝導性感圧接着剤を提供する。

また、請求項 5 記載の本発明は、40 deg C と 80 deg C における貯蔵弾性率の比(40 deg C 貯蔵弾性率/80 deg C 貯蔵弾性率)が 100 以上である請求項 1~3 いずれか一項に記載の熱伝導性感圧接着剤を提供する。

また、請求項 6 記載の本発明は、請求項 1~5 いずれか一項に記載の熱伝導性感圧接着剤からなり、厚みが 10~200  $\mu$ m である熱伝導性感圧接着シートを提供する。

また、請求項 7 記載の本発明は、請求項 6 記載の熱伝導性感圧接着シートの両側に、2 枚の剥離力の異なる離型処理されたフィルムが積層されてなる熱伝導性感圧接着シート積層体を提供する。

【0007】

以下に本発明を詳述する。

本発明における(a)炭素数が 2~18 のアルキル基を有するアクリル酸アルキルエステルを含有する共重合体(以下、共重合体(a)と記す場合がある)とは、炭素数が 2~18 のアルキル基を有するアクリル酸アルキルエステルからなる重合性単量体を主成分として、これと後述する重合性単量体とを混合し、重合することによって得られる共重合体をさす。

【0008】

上記炭素数が 2~18 のアルキル基を有するアクリル酸アルキルエステルとしては、特に限定されず、例えば、アクリル酸エチル、アクリル酸 n-プロピル、アクリル酸イソプロピル、アクリル酸ブチル、アクリル酸イソブチル、アクリル酸 sec-ブチル、アクリル酸 t-ブチル、アクリル酸シクロヘキシル、アクリル酸 n-オクチル、アクリル酸イソオクチル、アクリル酸 2-エチルヘキシル、アクリル酸ラウリル、アクリル酸イソミリスチル、アクリル酸ノニル、アクリル酸イソノニル、アクリル酸イソステアリル、アクリル酸ステアリル等が挙げられる。

これらは単独で用いられてもよく、2 種以上が併用されてもよい。

【0009】

In addition, this invention which is stated in Claim 4 furthermore offers thermal conductivity pressure-sensitive adhesive which is stated in Claim 1 ~3any Claim which contains (d ) adhesion-providing resin 3~50parts by weight .

In addition, as for this invention which is stated in Claim 5, thermal conductivity pressure-sensitive adhesive which is stated in Claim 1 ~3any Claim where 40 deg C and ratio (40 deg Celastic storage modulus /80 deg Celastic storage modulus ) of the elastic storage modulus in 80 deg C are 100 or more is offered.

In addition, this invention which is stated in Claim 6 consists of the thermal conductivity pressure-sensitive adhesive which is stated in Claim 1 ~5any Claim , offers thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet where thickness is 10 - 200; $\mu$ m .

In addition, this invention which is stated in Claim 7 in both sides of thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet which is stated in Claim 6, different release treated of 2 peeling force film which is done being laminated, offers thermal conductivity pressure-sensitive adhesion laminate sheet which becomes.

【0007】

this invention is detailed below.

copolymer which contains alkyl acrylate ester where (a ) carbon number in this invention has alkyl group of 2 - 18 (Below, copolymer (a ) with there are times when you inscribe. ) with, this polymerizable monomer which it mentions later ismixed with polymerizable monomer which consists of alkyl acrylate ester where carbon number has alkyl group 2 - 18 as main component , to copolymer which is acquired by factthat you polymerize points.

【0008】

Especially it is not limited as alkyl acrylate ester where above-mentioned carbon number has alkyl group 2 - 18, can list for example ethyl acrylate , n-propyl acrylate , isopropyl acrylate , butyl acrylate , isobutyl acrylate , acrylic acid s-butyl , t-butyl acrylate , cyclohexyl acrylate , acrylic acid n-octyl , isooctyl acrylate , 2-ethylhexyl acrylate , lauryl acrylate , isomyristyl acrylate , nonyl acrylate , isononyl acrylate , isostearyl acrylate , stearyl acrylate etc.

These may be used with alone , 2 kinds or more may be jointly used.

【0009】

上記共重合体(a)に用いられる他の重合性単量体成分としては、上記アクリル酸アルキルエステルと共重合可能な重合性単量体であれば特に限定されることなく用いられる。

【0010】

このような重合性単量体としては、例えば、極性を有する重合性単量体(以下、極性モノマー)が挙げられる。

上記極性モノマーとしては、特に限定されず、例えば、(メタ)アクリル酸、マレイン酸、フマル酸、イタコン酸等のカルボキシル基含有モノマー又はその無水物、(メタ)アクリルニトリル、N-ビニルピロリドン、N-ビニルカプロラクタム、アクリロイルモルホリン、(メタ)アクリルアミド、ジメチルアミノエチル(メタ)アクリレート、ジエチルアミノエチル(メタ)アクリレート、ジメチルアミノプロピルアクリルアミド等の窒素含有モノマー；2-ヒドロキシエチル(メタ)アクリレート、4-ヒドロキシブチルアクリレート、ポリオキシエチレン(メタ)アクリレート、ポリオキシプロピレン(メタ)アクリレート、カプロラクトン変成(メタ)アクリレート等の水酸基含有モノマー；N-ビニルホルムアミド、N-ビニルアセトアミド等のN-ビニルカルボン酸アミド等が挙げられる。

これらは単独で用いられてもよく、2 種以上が併用されてもよい。

【0011】

上記極性モノマーの含有量は、上記アクリル酸アルキルエステル 100 重量部に対して、20 重量部以下であることが好ましい。

20 重量部を超えると、得られた熱伝導性感圧接着剤の柔軟性が損なわれることがある。

より好ましくは、10 重量部以下である。

【0012】

また、共重合体(a)に用いられるさらに他の重合性単量体成分としては、特に限定されず、例えば、酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル、スチレン、イソボロニル(メタ)アクリレート、末端に重合性不飽和二重結合を有するオレフィン系重合体等が挙げられる。

これらの共重合可能なモノマーは、必要に応じて適宜添加される。

【0013】

上記共重合体(a)は、重量平均分子量が、3 万

If it is an above-mentioned alkyl acrylate ester and a copolymerizable polymerizable monomer as other polymerizable monomer component which is used for above-mentioned copolymer (a), it is used without especially being limited.

【0010】

You can list polymerizable monomer (Below, polar monomer) which possesses for example polarity as polymerizable monomer a this way.

As above-mentioned polar monomer, especially it is not limited, can list for example (meth) acrylic acid, maleic acid, fumaric acid, itaconic acid or other carboxyl group containing monomer or anhydride, (meth) acrylic nitrile, N-vinyl pyrrolidone, N-vinyl caprolactam, acryloyl morpholine, (meth) acrylamide, dimethylamino ethyl (meth) acrylate, diethyl aminoethyl (meth) acrylate, dimethylaminopropyl acrylamide or other nitrogen-containing monomer; 2-hydroxyethyl (meth) acrylate, 4-hydroxybutyl acrylate, polyoxyethylene (meth) acrylate, polyoxypropylene (meth) acrylate, caprolactone-modified (meth) acrylate or other hydroxy group-containing monomer; N-vinyl formamide, N-vinyl acetamide or other N-vinyl carboxylic acid amide etc.

These may be used with alone, 2 kinds or more may be jointly used.

【0011】

As for content of above-mentioned polar monomer, it is desirable to be 20 parts by weight or less vis-a-vis above-mentioned alkyl acrylate ester 100 parts by weight.

When it exceeds 20 parts by weight, there are times when softening of thermal conductivity pressure-sensitive adhesive which is acquired is impaired.

It is a more preferably, 10 parts by weight or less.

【0012】

In addition, especially it is not limited furthermore as other are used for copolymer (a) polymerizable monomer component, it can list olefin polymer etc which possesses polymerizable unsaturated double bond in for example vinyl acetate, vinyl propionate, styrene, isobornyl (meth) acrylate, end.

These copolymerizable monomer are added according to need appropriately.

【0013】

As for above-mentioned copolymer (a), weight average

~30 万であることが好ましい。

3 万未満であると、重合体の凝集力が小さくなりすぎてシート状に成形した場合に取り扱いにくくなることがある。

また、30 万を超えると、得られた熱伝導性感圧接着シートとしたときの柔軟性が損なわれることがある。

#### [0014]

上記共重合体(a)の合成方法は、特に限定されず、例えば、炭素数が 2~18 のアルキル基を有するアクリル酸アルキルエステルと上記共重合性単量体との混合物を、溶液重合法、乳化重合法、懸濁重合法、塊状重合法等で重合させることにより得られる。

その際、例えば熱重合開始剤や光重合開始剤、過硫酸カリウム、過硫酸アンモニウム、過酸化水素等、それらと還元剤を併用したレドックス系開始剤等の重合触媒が適宜用いられる。

#### [0015]

上記熱重合開始剤としては、例えば、過酸化ベンゾイル、t-ブチルパーベンゾエイト、クメンヒドロパーオキシド、ジイソプロピルパーオキシジカーボネート、ジ-n-プロピルパーオキシジカーボネート、ジ(2-エトキシエチル)パーオキシジカーボネート、t-ブチルパーオキシネオデカノエート、t-ブチルパーオキシピバレエート、(3,5,5-トリメチルヘキサノイル)パーオキシド、ジプロピオニルパーオキシド、ジアセチルパーオキシド等の有機過酸化物、2,2'-アゾビスイソブチロニトリル、2,2'-アゾビス(2-メチルブチロニトリル)、1,1'-アゾビス(シクロヘキサン-1-カルボニトリル)、2,2'-アゾビス(2,4-ジメチルバレロニトリル)、ジメチル-2,2'-アゾビス(2-メチルプロピオネート)、4,4'-アゾビス(4-シアノバレック酸)、2,2'-アゾビス(2-ヒドロキシメチルプロピオニトリル)、2,2'-アゾビス[2-(2-イミダゾリン-2-イル)プロパン]等のアゾ系化合物等が挙げられる。

#### [0016]

上記光重合開始剤としては、例えば、4-(2-ヒドロキシエトキシ)フェニル(2-ヒドロキシ-2-プロピル)ケトン[ダロキュア-2959、メルク社製]、 $\alpha$ -ヒドロキシ- $\alpha$ ,  $\alpha'$ -ジメチル-アセトフェノン[ダロキュア-1173、メルク社製]、メトキシアセトフェノン、2,2-ジメトキシ-2-フェニルアセトフェノン[イルガキュア 651、チバガイギー社製]、2-ヒドロキシ-2-シクロヘキシルアセトフェノン[イルガキュア 184、チ

molecular weight, 30,000 - 300,000 being desirable.

When it is under 30,000, cohesive force of polymer becoming too small, when it formed in sheet, handling there are times when it becomes difficult.

In addition, when it exceeds 300,000, when making thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet which is acquired, there are times when softening is impaired.

#### [0014]

synthetic method of above-mentioned copolymer (a) is not limited, especially is acquired by polymerizing blend of alkyl acrylate ester and the above-mentioned copolymerizable monomer where for example carbon number has alkyl group 2 - 18, with solution polymerization method, emulsion polymerization method, suspension polymerization method, bulk polymerization method etc.

At that occasion, as needed it can use, those and redox system initiator or other polymerization catalyst which such as for example thermal polymerization initiator jointly uses reductant and photoinitiator, potassium persulfate, ammonium persulfate, hydrogen peroxide.

#### [0015]

As above-mentioned thermal polymerization initiator, for example benzoyl peroxide, t-butyl perbenzoate, cumene hydroperoxide, diisopropyl peroxy dicarbonate, di-n-propyl peroxydicarbonate, di(2-ethoxyethyl) peroxy dicarbonate, t-butyl peroxy neodecanoate, t-butyl peroxy \* Bare A. jp7, (3, 5 and 5-trimethyl hexanoyl) peroxide, di propanoyl peroxide, diacetyl peroxide or other organic peroxide; 2, 2'-azobisisobutyronitrile, 2, 2'-azobis(2-methyl butyronitrile), 1 and 1'-azobis(cyclohexane-1-carbonitrile), 2 and 2'-azobis(2 and 4-dimethyl valeronitrile), dimethyl-2, 2'-azobis(2-methyl propionate), 4 and 4'-azobis(4-[shianobarekku] acid), 2 and 2'-azobis(2-hydroxymethyl propionitrile), you can list 2 and 2'-azobis[2-(2-imidazoline-2-yl) propane] or other azo type compound etc.

#### [0016]

As above-mentioned photoinitiator, for example 4-(2-hydroxyethoxy) phenyl (2-hydroxy-2-propyl) ketone [Durocure 2959, Merck make]; the; al-hydroxy - the; al and; al'-dimethyl - acetophenone [Durocure 1173, Merck make]; methoxy acetophenone, 2, 2-dimethoxy-2-phenyl acetophenone [Irgacure 651, Ciba-Geigy make], 2-hydroxy-2-cyclohexyl acetophenone "Irgacure 184, Ciba-Geigy make" or other acetophenone type; benzyl dimethyl ketal or

バガイギー社製」等のアセトフェノン系;ベンジルジメチルケタール等のケタール系;その他、ハロゲン化ケトン、アシルホスフィノキシド、アシルホスフォナート等が挙げられる。

[0017]

上記共重合体(a)は、必要に応じて耐熱性やクリープ特性を向上させるために、外部架橋剤や内部架橋剤等の架橋剤を添加して、適宜架橋処理を施してもよい。

ここでいう外部架橋剤とは、線状高分子化合物を互いに化学結合させ 3 次元構造をとらせるために一般に使用される架橋剤である。

また、内部架橋剤とは、多官能の重合性単量体であって、一般の架橋剤を使用せずとも 3 次元構造を形成しうる化合物を言う。

上記外部架橋剤としては、例えば、トリレンジイソシアネート、トリメチロールプロパントリレンジイソシアネート、ジフェニルメタントリイソシアネート等の多官能イソシアネート系架橋剤;ポリエチレングリコールジグリシジルエーテル、ジグリシジルエーテル、トリメチロールプロパントリグリシジルエーテル等のエポキシ系架橋剤;メラミン樹脂系架橋剤、アジリジン系架橋剤、金属塩系架橋剤、金属キレート系架橋剤、アミノ樹脂系架橋剤、過酸化水素系架橋剤等が挙げられる。

[0018]

上記内部架橋剤としては、例えば、1,4-ブタンジオールジ(メタ)アクリレート、1,6-ヘキサジオールジ(メタ)アクリレート、1,9-ノナンジオールジ(メタ)アクリレート、(ポリ)エチレングリコールジ(メタ)アクリレート、(ポリ)プロピレングリコールジ(メタ)アクリレート、ネオペンチルグリコールジ(メタ)アクリレート、ペンタエリスリトールジ(メタ)アクリレート、グリセリン(メタ)アクリレート、ペンタエリスリトールトリ(メタ)アクリレート、トリメチロールプロパントリメタクリレート、(メタ)アクリル酸アリル、(メタ)アクリル酸ビニル、ジビニルベンゼン、エポキシ(メタ)アクリレート、ポリエステル(メタ)アクリレート、ウレタン(メタ)アクリレート等の多官能モノマーが挙げられる。

これらは、共重合体(a)の重合時に添加され、重合と同時に内部架橋させる。

[0019]

上記外部架橋剤あるいは内部架橋剤の添加量は、共重合体(a)100 重量部に対して 5 重量部以

other ketal system; in addition, you can list halogenated ketone, acyl phosphin oxide, acyl phosphonate etc.

[0017]

Above-mentioned copolymer (a), according to need heat resistance and creep property in order to improve, adding outside crosslinking agent and interior crosslinking agent or other crosslinking agent, may administer as needed crosslinking.

outside crosslinking agent referred to here, chemical bond doing linear state polymeric compound mutually, is the crosslinking agent which is used in order to make take 3-dimensional structure generally.

In addition, interior crosslinking agent, with polymerizable monomer of polyfunctional, general crosslinking agent is not used also and 3-dimensional structure compound which it can form is.

As above-mentioned outside crosslinking agent, you can list for example toluene diisocyanate, trimethylolpropane toluene diisocyanate, diphenylmethane triisocyanate or other polyfunctional isocyanate type crosslinking agent; polyethylene glycol diglycidyl ether, diglycidyl ether, trimethylolpropane triglycidyl ether or other epoxy crosslinking agent; melamine resin crosslinking agent, aziridine crosslinking agent, metal salt crosslinking agent, metal chelate crosslinking agent, amino resin system crosslinking agent, peroxide crosslinking agent etc.

[0018]

As above-mentioned interior crosslinking agent, you can list for example 1, 4- butanediol di (meth) acrylate, 1, 6-hexanediol di (meth) acrylate, 1, 9-nonanediol di (meth) acrylate, (poly) ethyleneglycol di (meth) acrylate, (poly) propylene glycol di (meth) acrylate, neopentyl glycol di (meth) acrylate, pentaerythritol di (meth) acrylate, glycerine (meth) acrylate, pentaerythritol tri (meth) acrylate, trimethylolpropane trimethacrylate, allyl (meth) acrylate, vinyl (meth) acrylate, divinyl benzene, epoxy (meth) acrylate, polyester (meth) acrylate, urethane (meth) acrylate or other polyfunctional monomer.

These are added when polymerizing copolymer (a), interior crosslinking dosimultaneously with polymerization.

[0019]

As for above-mentioned outside crosslinking agent or addition quantity of interior crosslinking agent, it is desirable

下であることが好ましい。

5 重量部を超えると、得られた熱伝導性感圧接着剤の柔軟性が損なわれることがある。

より好ましくは、3 重量部以下である。

また、上記内部架橋剤あるいは外部架橋剤は、単独で用いられてもよく、2 種以上が併用されても良い。

【0020】

本発明における熱伝導性感圧接着剤には、樹脂の柔軟性を向上させる目的で(b)上記共重合体(a)と非相溶かつ融点が40~80 deg Cである化合物(以下、化合物(b)と記する場合がある)が含まれる。

非相溶かつ融点が40~80 deg Cである化合物を添加することにより、その温度領域で樹脂の柔軟性を大幅に向上できる。

非相溶であればこの化合物は、40~80 deg Cの範囲で溶融し、樹脂全体を大幅に軟化させることができる。

ここで言う非相溶とは、化合物(b)と共重合体(a)とが、完全には相溶しないということであり、部分的には相溶していてもかまわない。

しかしながら、分子レベルまで完全に相溶すると、その過疎化効果により共重合体(a)が必要以上に軟化してしまい取り扱い難くなることがある。

相溶・非相溶を見わけける簡単な手段としては、例えば、透明な樹脂の場合は化合物(b)を添加した際に白濁すると非相溶と判断できる、また、不透明な樹脂の場合は電子顕微鏡等の手段を使って観察することができる。

【0021】

上記化合物(b)の融点は、40 deg C~80 deg Cであり、好ましくは、45 deg C~75 deg Cである。

融点が、40 deg C未満では、輸送・保管中に軟化・流動してシート形状が崩れることがある。

また、80 deg Cより高いと、接着シートの軟化温度が高くなりすぎるため、発熱体となるICチップ等の発熱量によっては十分に軟化せず熱伝導性能を発揮できないことがある。

【0022】

to be 5 parts by weight or less copolymer (a ) vis-a-vis 100 parts by weight .

When it exceeds 5 parts by weight , there are times when softening of thermal conductivity pressure-sensitive adhesive which is acquired is impaired.

It is a more preferably , 3 parts by weight or less .

In addition, above-mentioned interior crosslinking agent or outside crosslinking agent may be used with alone , 2 kinds or more are good being jointly used.

【0020】

In thermal conductivity pressure-sensitive adhesive in this invention , (b ) above-mentioned copolymer (a ) with the compound (Below, compound (b ) with you inscribe , \* it is when. ) where immiscible and melting point are 40 - 80 deg C is contained softening of resin with objective which improves.

softening of resin greatly it can improve with temperature region by adding compound where immiscible and melting point are 40 - 80 deg C.

If it is a immiscible , it can melt this compound , in range of 40 - 80 deg C, resin entirety greatly can soften.

immiscible referred to here, with notion that where, as for the partially compound (b ) with copolymer (a ) , does not mix to perfection, being mixed, you are not concerned.

But, when it mixes completely to molecular level , copolymer (a ) softens abovenecessity with depopulation effect and handling are times when it becomes difficult.

When you look at mixture & immiscible and in case of for example transparent resin the clouding you do occasion where compound (b ) is added as simple means which it can boil, it can judge as immiscible , in addition, in case of opaque resin using electron microscope or other means , you can observe.

【0021】

melting point of above-mentioned compound (b ) , with 40 deg C~80 deg C, is the preferably , 45 deg C~75 deg C.

melting point , under 40 deg C, while transporting & storage softening & flowing, are times when sheet deteriorates.

In addition, when it is higher than 80 deg C, because softening temperature of the adhesive sheet becomes too high, there are times which with IC chip or other heat emission which becomes heating element cannot soften in fully and cannot show the thermal conductivity .

【0022】



上記化合物(b)としては、特に限定されず、例えば、高級脂肪族系アルコール、高級脂肪酸、フタル酸、及びこれらのエステル等が挙げられる。

上記高級脂肪族系アルコールとしては、例えば、ペンタデカノール、ヘキサデカノール、オクタデカノール、及びこれらのエステル等が挙げられる。

上記高級脂肪酸としては、例えば、トリデカン酸、ミリスチン酸、ペンタデカン酸、パルミチン酸、及びこれらのエステル等が挙げられる。

上記フタル酸エステルとしては、例えば、ジシクロヘキシルフタレート等が挙げられる。

上記化合物(b)は単独で用いられてもよく、2 種以上が併用されてもよい。

#### [0023]

上記化合物(b)の含有量は、共重合体(a)50~97重量部に対して、3~50重量部である。

3重量部未満であると、ICチップ等に使用した場合、これらの放熱では軟化流動せず、熱伝導性能が十分に発揮されない。

また、50重量部を越えると凝集力が低下し、シート状に成形した際の取り扱いに支障をきたすためである。

より好ましくは、共重合体(a)60~97重量部に対して、3~40重量部である。

#### [0024]

本発明の熱伝導性感圧接着剤には、熱伝導性を高める目的で熱伝導性微粒子が添加される。

上記熱伝導性微粒子(c)としては、特に限定されず、例えば、窒化ホウ素、炭化珪素、窒化珪素、窒化アルミニウム、酸化アルミニウム、等からなる熱伝導性微粒子等が挙げられる。

中でも、窒化ホウ素、炭化珪素、窒化珪素、窒化アルミニウムは熱伝導率が高く、少ない充填量で高い熱伝導性が得られ、柔軟性を確保しやすい点で好ましく用いられる。

さらに、窒化ホウ素は形状が鱗片形状又は扁平形状であるため単位重量当たりの表面積が大きく、樹脂に充填する場合に粒子同士が接触しやすく、熱の通り道となるパスを形成しやすいため、少ない充填量で高い熱伝導性が得られ、かつ、柔軟性を確保しやすい。

Above-mentioned compound (b) as, especially it is not limited, can list for example high grade aliphatic type alcohol, higher aliphatic acid, phthalic acid, and these ester etc.

As above-mentioned high grade aliphatic type alcohol, you can list for example penta decanol, hexadecanol, octadecanol, and these ester etc.

As above-mentioned higher aliphatic acid, you can list for example tridecanoic acid, myristic acid, pentadecanoic acid, palmitic acid, and these ester etc.

As above-mentioned phthalic acid ester, you can list for example dicyclohexyl phthalate etc.

Above-mentioned compound (b) may be used with alone, 2 kinds or more maybe jointly used.

#### [0023]

content of above-mentioned compound (b) is 3 - 50 parts by weight copolymer (a) vis-a-vis 50 - 97 parts by weight.

When it is under 3 parts by weight, when you use for IC chip etc, with these heat release softening flow it does not do, thermal conductivity is not shown in fully.

In addition, when it exceeds 50 parts by weight, case where cohesive force decreased, formed in sheet is in order to cause hindrance to the handling.

more preferably, copolymer (a) vis-a-vis 60 - 97 parts by weight, they are 3 - 40 parts by weight.

#### [0024]

In thermal conductivity pressure-sensitive adhesive of this invention, thermal conductivity fine particle is added with objective which raises thermal conductivity.

Above-mentioned thermal conductivity fine particle (c) as, especially it is not limited, it can list thermal conductivity fine particle etc which consists of for example boron nitride, silicon carbide, silicon nitride, aluminum nitride, aluminum oxide, etc.

High thermal conductivity is acquired with filled amount where, boron nitride, silicon carbide, silicon nitride, aluminum nitride thermal conductivity is high even among them, is little, is desirably used in point which is easy to guarantee softening.

Furthermore, as for boron nitride because shape is flake condition or flat shape, surface area of per unit weight is large, when it is filled in the resin, to form path to which particle is easy to contact, the passage of heat becomes it damages easily, high thermal conductivity is acquired with little filled amount, at same time, is easy to guarantee the softening.

[0025]

上記熱伝導性微粒子(c)の純度は、高い熱伝導性能を維持するために、95 重量%以上であることが好ましい。

95 重量%未満であると、熱伝導性が低下し、それを補うために更に添加量を増やさなければならず、柔軟性が損なわれることがある。

より好ましくは、97 重量%以上である。

[0026]

上記熱伝導性微粒子(c)の粒径は、平均粒径が100  $\mu$ m 以下であることが好ましい。

100  $\mu$ m を超えると、得られる熱伝導性感圧接着シートの表面の平滑性が低くなり、発熱体や放熱体に充分密着できず、優れた熱抵抗性能を得にくくなる。

より好ましくは、0.5~50  $\mu$ m である。

[0027]

上記熱伝導性微粒子(c)の含有量は、共重合体(a)50~97 重量部と化合物(b)3~50 重量部とに対して、10~500 重量部である。

含有量が、10 重量部未満であると、柔軟性は向上するが十分な熱伝導性能が得られない。

また、500 重量部を超えると、シート状に成形したときの強度が大きく低下するため形状保持性が損なわれる。

好ましくは、15~400 重量部である。

[0028]

本発明の熱伝導性感圧接着剤は、更に、接着性を向上するために粘着付与樹脂(d)を含有してもよい。

上記粘着付与樹脂を含有することによって、接着性、特に金属への接着性を向上させることができ、取り扱い性を更に向上させることができる。

上記粘着付与樹脂(d)としては、例えば、 $\alpha$ ピネン重合体、 $\beta$ ピネン重合体、ジペンテン重合体、テルペン-フェノール、 $\alpha$ ピネン-フェノール共重合体等のポリテルペン樹脂;エスコレツ(エッソ化学社製)、タッキロール(住友化学社製)、タックエ

softening .

[0025]

As for purity of above-mentioned thermal conductivity fine particle (c), in order to maintain high thermal conductivity, it is desirable to be 95 weight % or more .

When it is under 95 weight %, thermal conductivity to decrease, furthermore the addition quantity must be increased in order to supply that, there are times when softening is impaired.

It is a more preferably, 97weight % or more .

[0026]

As for particle diameter of above-mentioned thermal conductivity fine particle (c), it is desirable for average particle diameter to be 100; $\mu$ m or less .

When it exceeds 100; $\mu$ m, smoothness of surface of thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet which is acquired satisfactory to become low, not be able to stick to the heating element and heat sink, it becomes difficult to obtain thermoresistivity performance which is superior.

It is a more preferably, 0.5~50; $\mu$ m .

[0027]

content of above-mentioned thermal conductivity fine particle (c) is 10 - 500 parts by weight copolymer (a) vis-a-vis with 50 - 97 parts by weight and compound (b) 3 - 50 parts by weight .

When content, is under 10 parts by weight, softening improves, but sufficient thermal conductivity is not acquired.

In addition, when it exceeds 500 parts by weight, when forming in sheet, because strength decreases largely, shape retention is impaired.

It is a preferably, 15~400parts by weight .

[0028]

thermal conductivity pressure-sensitive adhesive of this invention, furthermore, adhesiveness may contain adhesion-providing resin (d) in order to improve.

By fact that above-mentioned adhesion-providing resin is contained, adhesiveness to adhesiveness, especially metal it is possible, handling property furthermore can improve to improve.

Above-mentioned adhesion-providing resin (d) as, for example;  $\alpha$  pinene polymer,  $\beta$  pinene polymer, dipentene polymer, terpene-phenol,  $\alpha$  pinene-phenol copolymer or other polyterpene resin; Escorez (Esso chemistry supplied), Tackirol (Sumitomo Chemical Co. Ltd. (DB 69-053-5307))

ース(三井化学社製)等に代表される C5 系石油樹脂;ペトロジン(三井化学社製)、ハイレジン(東邦化学社製)、アルコン(荒川化学社製)等に代表される C9 系石油樹脂;ロジン、変性ロジン、重合ロジン、ロジンエステル、部分水添ロジン、完全水添ロジン等のロジン系樹脂;DCPD 系石油樹脂、スチレン系樹脂、アルキルフェノール系樹脂、ポリブテン、ポリイソブチレン等が挙げられる。

また、これらを酸変成した粘着付与樹脂は、特に金属との接着性を向上させることができる。

これらは単独で用いられてもよく、2 種以上が併用されてもよい。

#### 【0029】

上記粘着付与樹脂(d)の含有量は、共重合体(a)と化合物(b)との和 100 重量部に対して、3~50 重量部であることが好ましい。

3 重量部未満であると、接着性にほとんど効果がなく、50 重量部を超えると、樹脂の柔軟性が損なわれ、さらに流動性や優れた熱抵抗性能が十分得られないことがある。

より好ましくは、5~40 重量部である。

#### 【0030】

本発明の熱伝導性感圧接着剤は、40 deg C と 80 deg C における貯蔵弾性率の比(40 deg C 貯蔵弾性率/80 deg C 貯蔵弾性率)が 100 以上であることが好ましい。

熱伝導性感圧接着剤を放熱体と発熱体の間に挿入するとき、温度は通常 40 deg C 以下程度であり、このとき放熱体と発熱体の固定に通常圧力をかけるが、そのときに IC などの保護のためにもある程度の弾性率を有していることが好ましい。

また、発熱体が動作している、通常 IC の動作温度では軟化してその界面を充満する必要がある。

40 deg C 付近での弾性率は取り扱いの面では  $10^3$  Pa 以上が必要である。

貯蔵弾性率の比が、100 より小さいと 40 deg C から 80 deg C の間での樹脂の柔軟化度が不十分であり、優れた熱抵抗性能を発揮することが

supplied), C5 petroleum resin; which is represented in [takkueesu] (Mitsui Chemicals Inc. (DB 69-056-7037) supplied) etc [petoroin] (Mitsui Chemicals Inc. (DB 69-056-7037) supplied), high resin (Toho Chemical Industry Co. Ltd. (DB 69-057-0510) supplied), you can list C<lt;SB>9<lt;SB> type petroleum resin; rosin, modified rosin, polymerized rosin, rosin ester, partially hydrogenated rosin, completely hydrogenated rosin or other rosin type resin; DCPD petroleum resin, styrenic resin, alkylphenol resin, polybutene, polyisobutylene etc which is represented in Arkon (Arakawa Chemical Industries Ltd. (DB 69-057-3977) supplied) etc.

In addition, these acid modification adhesiveness of especially metal it can improve adhesion-providing resin which is done.

These may be used with alone, 2 kinds or more may be jointly used.

#### 【0029】

As for content of above-mentioned adhesion-providing resin (d), it is desirable to be 3 - 50 parts by weight copolymer (a) with compound (b) with vis-a-vis sum total 100 parts by weight.

When it is under 3 parts by weight, there is not an effect for most part in adhesiveness, when it exceeds 50 parts by weight, softening of resin is impaired, furthermore fluidity and thermoresistivity performance which is superior the fully are times when it is not acquired.

It is a more preferably, 5~40 parts by weight.

#### 【0030】

As for thermal conductivity pressure-sensitive adhesive of this invention, it is desirable for 40 deg C and theratio (40 deg Celastic storage modulus / 80 deg Celastic storage modulus) of elastic storage modulus in 80 deg C to be 100 or more.

When heat conduction pressure-sensitive adhesive inserting between heat sink and heating element, as for the temperature usually with extent of 40 deg C or less, at time of the this normal pressure is bet on fixing of heat sink and heating element, that time having possessed modulus of certain extent even for IC or other protection is desirable.

In addition, heating element operates, usually, with operating temperature of IC softening interface it is necessary to be filled.

As for modulus with 40 deg C vicinity in aspect of handling  $10^{>3}</sup>$  Pa or greater are necessary.

When ratio of elastic storage modulus, is smaller than 100, degree of softening of resin between 80 deg C with insufficient, cannot show thermoresistivity performance

できない。

また、上記熱伝導性感圧接着剤は、上記にあげた理由により、40 deg Cにおける貯蔵弾性率が $10^3 \sim 10^7$  Pa、80 deg Cにおける貯蔵弾性率が $10^0 \sim 10^5$  Paであることが好ましい。

#### 【0031】

本発明の熱伝導性感圧接着剤は、熱伝導性を大きく阻害されない限りにおいて、フィラー、増粘剤、顔料等の他の添加剤を含有してもよい。

#### 【0032】

本発明における熱伝導性感圧接着シートとは、上記熱伝導性感圧接着剤をシート状に成形してなる熱伝導性感圧接着シートである。

ここでいうシートとは、テープ、フィルム等も含む。

上記熱伝導性感圧接着シートの製造方法は、特に限定されず、例えば、溶剤キャスト法、ホットメルト塗工法等が挙げられる。

上記溶剤キャスト法は、例えば、上記重合体(a)溶液に、化合物(b)熱伝導性微粒子(c)及び必要に応じて粘着付与樹脂(d)を混合し、これを用いて剥離ライナー等の支持体面上を被覆し、硬化させることにより得られる。

#### 【0033】

上記熱伝導性感圧接着シートの厚みは、10~200  $\mu$ mであることが好ましい。

200  $\mu$ mを超えると熱抵抗性能が低下するばかりかコスト的にも不利なことがあり、10  $\mu$ m未満であると、十分な密着性が得られず、高い熱伝導性を得ることが困難となることがある。

さらに好ましくは、30~150  $\mu$ mである。

#### 【0034】

本発明における熱伝導性感圧接着シート積層体は、上記熱伝導性感圧接着シートの両側に、2枚の剥離力の異なる離型処理されたフィルムが積層されてなるものであることが好ましい。

which is superior from 40 deg C.

In addition, as for above-mentioned thermal conductivity pressure-sensitive adhesive, it is desirable for the elastic storage modulus elastic storage modulus in 40 deg C with reason which was increased to description above, in  $10^{3 \sim 7}$  Pa, 80 deg C to be  $10^{0 \sim 5}$  Pa.

#### 【0031】

If thermal conductivity pressure-sensitive adhesive of this invention to be large inhibition is not done thermal conductivity, it is possible to contain filler, thickener, pigment or other other additive in.

#### 【0032】

thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet in this invention, above-mentioned thermal conductivity pressure-sensitive adhesive forming in the sheet, is thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet which becomes.

sheet referred to here, also tape, film etc includes.

manufacturing method of above-mentioned thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet is not limited, especially can list for example solvent casting method, hot melt coating etc.

Above-mentioned solution casting method, compound (b) thermal conductivity fine particle (c) and mixes according to need adhesion-providing resin (d) to for example above-mentioned copolymer (a) solution, sheath does on the release liner \*or other support surface making use of this, is acquired by hardening.

#### 【0033】

As for thickness of above-mentioned thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet, it is desirable to be 10 - 200  $\mu$ m.

When it exceeds 200  $\mu$ m, thermoresistivity performance there is a inconvenient thing even in cost it decreases not only, when it is under 10  $\mu$ m, there are times when it becomes difficult to obtain thermal conductivity where the satisfactory adhesion is not acquired, is high.

Furthermore it is a preferably, 30~150  $\mu$ m.

#### 【0034】

As for thermal conductivity pressure-sensitive adhesion laminate sheet in this invention, in both sides of above-mentioned thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet, different release treated of 2 peeling force film which is done being laminated, it is desirable to be

このような積層体にすることにより、取り扱い性が良くなる。

離型力が同じであると、片側の離型フィルムをはがすときに浮きが生じたりするために剥離力の異なる離型フィルムを用いる。

上記熱伝導性感圧接着シート積層体の製造方法としては、特に限定されず、例えば、離形処理されたフィルム 1) に熱伝導性感圧接着剤からなる接着剤層を設け、さらにその上に離形処理されたフィルム 1) と剥離力の異なる離形処理されたフィルム 2) とを積層する方法が挙げられる。

#### 【0035】

本発明の熱伝導性感圧接着剤、熱伝導性感圧接着シート及びその積層体は、発熱体と放熱体との間に介在させて用いられることが好ましい。

#### 【0036】

(作用) 本発明の熱伝導性感圧接着剤は、共重合体(a)、融点 40~80 deg C かつ共重合体(a)に非相溶な化合物(b)、及び熱伝導性微粒子(c)からなり、IC などの発熱体と放熱体の間に挿入して用いるとき、良好な接着性を示し、かつ発熱によってこの熱伝導性感圧接着剤は軟化し、形状追従性がさらに向上し、発熱体と放熱体の間を隙間なく埋めることができるため、極めて優れた熱伝導性(熱抵抗)を示す。

さらに、シート化することによって非常に取り扱いが容易となり、従来のシリコングリースと比較して作業性が大幅に良くなる。

#### 【0037】

##### 【実施例】

以下に実施例を掲げて本発明を更に詳しく説明するが、本発明はこれら実施例のみに限定されるものではない。

#### 【0038】

##### (実施例 1)

冷却管、温度計、攪拌器を備えたセパラブルフラスコに、2-エチルヘキシルアクリレート(三菱化学社製)99.5 重量部、2-ヒドロキシエチルメタクリレート(大阪有機工業社製)0.5 重量部、n-ドデカ

something which becomes.

handling property becomes good by making laminate a this way.

When mold release force is same, when peeling off release film of one side ,different release film of peeling force is used because floating occurs.

As manufacturing method of above-mentioned thermal conductivity pressure-sensitive adhesion laminate sheet , especially it is not limited, for example mold release it provides adhesive layer which consists of thermal conductivity pressure-sensitive adhesive in film 1) which was treated furthermore mold release different mold release of the film 1) and peeling force which were treated it can list method which laminates film 2) which was treated on that.

#### 【0035】

As for thermal conductivity pressure-sensitive adhesive , thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet and its laminate of this invention , lying between between the heating element and heat sink , it is desirable to be used.

#### 【0036】

Because thermal conductivity pressure-sensitive adhesive of (Action or Working ) this invention , copolymer (a ) , immiscible compound (b ) , and it consists of thermal conductivity fine particle (c ) in melting point 40~80 deg C , and copolymer (a ) inserts between IC or other heating element and heat sink and when using , it shows the satisfactory adhesiveness , at same time this thermal conductivity pressure-sensitive adhesive softens with heat emission , shape conforming behavior furthermore improves , heating element and to bury between the heat sink without interstice it is possible , thermal conductivity (thermorestivity ) which quite is superior is shown.

Furthermore, by fact that making sheet it does handling becomes easy in unusual , workability becomes greatly good by comparison with the conventional silicon grease .

#### 【0037】

##### [Working Example (s )]

Putting out Working Example below , furthermore you explain this invention in detail , but this invention is not something where are limited in only these Working Example .

#### 【0038】

##### (Working Example 1 )

Until in separable flask which has cooling tube , thermometer , stirrer , 2 -ethylhexyl acrylate (Mitsubishi Chemical Corporation (DB 69-056-6740 ) supplied ) 99.5 parts by weight , 2- hydroxyethyl methacrylate (Osaka

ンチオール 0.2 重量部を酢酸エチル 90 重量部とともに仕込み、窒素ガス雰囲気下、還流するまで昇温して 20 分間保持した後、過酸化ベンゾイル 0.2 重量部を酢酸エチル 5 重量部に溶解した溶液を滴下し、4 時間反応した。

この後更に、過酸化ベンゾイル 0.1 重量部を酢酸エチル 5 重量部に溶解した溶液を滴下し、更に 3 時間反応した。

その後、トルエン 50 重量部を攪拌混合し、粘度 500cps の共重合体溶液を得た。

得られた共重合体の重量平均分子量(Mw)をゲルパーミエーションクロマトグラフ(GPC)を使ってスチレン換算で測定したところ、15 万であった。

得られた共重合体溶液の固形分換算で 97 重量部に対し、1-ペンタデカノール(和光純薬社製;融点 45 deg C)3 重量部、窒化ホウ素(商品名「グレード HGP」、電気化学工業社製;鱗片形状、粒子径 5  $\mu$ m、純度 99%)30 重量部を均一になるまで混合し、熱伝導性感圧接着剤溶液を得た。

次いで、離型処理した 50  $\mu$ m 厚のポリエチレンテレフタレート(PET)フィルム上に上記熱伝導性感圧接着剤溶液を塗工乾燥後の厚みが 100  $\mu$ m になるように塗工した後、80 deg C に調整した乾燥機で 10 分間乾燥し、熱伝導性感圧接着シートを得た。

【0040】

(実施例 3)

アクリル酸 n-オクチル(三菱化学社製)99.6 重量部、2-ヒドロキシエチルアクリレート(大阪有機工業社製)0.4 重量部、n-ドデカンチオール 0.1 重量部を酢酸エチル 90 重量部とともに仕込んだこと以外は、実施例 1 と同様にして熱伝導性感圧接着シートを得た。

得られた共重合体の Mw は 27 万であった。

得られた共重合体溶液の固形分換算で 75 重量部に対し、ミリスチン酸(和光純薬社製;融点 54 deg C)25 重量部、窒化ホウ素(商品名「グレード HGP」、電気化学工業社製;鱗片形状、粒子径 5

Organic Chemical Industry Ltd. (DB 69-089-7699 ) industry supplied ) with ethylacetate 90parts by weight you insert 0.5 parts by weight , n- dodecane thiol 0.2 parts by weight , under nitrogen gas atmosphere , reflux do the temperature rise doing, 20 minute after keeping, it dripped solution which melts benzoyl peroxide 0.2 parts by weight in ethylacetate 5parts by weight , 4 hours reacted.

After this furthermore, it dripped solution which melts the benzoyl peroxide 0.1 parts by weight in ethylacetate 5parts by weight , furthermore 3 hours reacted.

After that, it agitated mixed toluene 50parts by weight , acquired copolymer solution of the viscosity 500cps .

When using gel permeation chromatograph (GPC ) , it measured weight average molecular weight (Mw ) of copolymer which it acquires with styrene conversion , 150,000 was.

1 -penta decanol (Wako Pure Chemical Industries Ltd. (DB 69-059-8875 ) supplied ;melting point 45 deg C ) 3 parts by weight , boron nitride (tradename "grade HGP " , Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha (DB 69-056-8985 ) supplied ;flake condition, particle diameter 5; $\mu$ m , purity 99% , ) 30 parts by weight until it becomes uniform , were mixed with solid fraction conversion of copolymer solution which it acquires vis-a-vis 97 parts by weight , the thermal conductivity pressure-sensitive adhesive solution was acquired.

Next, after in order for thickness after painting and drying to become 100; $\mu$ m , painting above-mentioned thermal conductivity pressure-sensitive adhesive solution on polyethylene terephthalate (PET ) film of 50; $\mu$ m thick which release treated are done, 10 min it dried with dryer which was adjusted 80 deg C, acquired thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet .

【0040】

(Working Example 3 )

acrylic acid n- octyl (Mitsubishi Chemical Corporation (DB 69-056-6740 ) supplied ) 99.6 parts by weight , 2- hydroxyethyl acrylate (Osaka Organic Chemical Industry Ltd. (DB 69-089-7699 ) industry supplied ) other than thing which with ethylacetate 90parts by weight inserted 0.4 parts by weight , n- dodecane thiol 0.1 parts by weight , thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet was acquired to similar to Working Example 1.

Mw of copolymer which it acquires was 270,000.

myristic acid (Wako Pure Chemical Industries Ltd. (DB 69-059-8875 ) supplied ;melting point 54 deg C ) 25 parts by weight , boron nitride (tradename "grade HGP " , Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha (DB 69-056-8985 )

μm、純度 99%、)200 重量部を均一になるまで混合し、熱伝導性感圧接着剤溶液を得た。

以下、実施例 1 と同様にして熱伝導性感圧接着シートを得た。

【0051】

【発明の効果】

本発明は、上述の構成よりなるので、電気・電子部品等の発熱体の放熱用途等に使用した際に、熱伝導性能に優れ、さらに柔軟で形状追従性及び良好な接着性を有し、作業性の良い熱伝導性感圧接着剤及び熱伝導性感圧接着シートを提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】

熱抵抗を測定するための測定装置を示す図である。

【符号の説明】

1

冷却器

2

熱伝導性感圧接着シート

3

IC

4

ボルト

5

恒温水槽

Drawings

【図1】

supplied ;flake condition, particle diameter 5;μm , purity 99%, ) 200 parts by weight until it becomes uniform , weremixed with solid fraction conversion of copolymer solution which it acquires vis-a-vis 75 parts by weight , thermal conductivity pressure-sensitive adhesive solution was acquired.

thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet was acquired below, to similar to Working Example 1.

【0051】

[Effects of the Invention ]

Because this invention consists of above-mentioned configuration , occasionwhere you use for heat release application etc of electrical & electronic parts or other heating element , it is superior in the thermal conductivity , furthermore possesses shape conforming behavior and satisfactory adhesiveness with flexible , it can offer thermal conductivity pressure-sensitive adhesive and thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet where workability is good.

[Brief Explanation of the Drawing (s )]

[Figure 1 ]

It is a figure which shows measuring apparatus in order to measure thermoresistivity .

[Explanation of Symbols in Drawings ]

1

cooler

2

thermal conductivity pressure-sensitive adhesion sheet

3

IC

4

bolt

5

constant temperature water tank

[Figure 1 ]

